



Home



Search



List



First



Prev

Go to



Next



Last

☐ Include

## MicroPatent<sup>®</sup> PatSearch Fulltext: Record 1 of 1

**Reference:** YK**Search scope:** US Granted US Applications EP-A EP-B WO JP (bibliographic data only)**Years:** 1981-2006**Patent/Publication No.:** ((JP02006584))[Order/Download](#)[Family Lookup](#)[Find Similar](#)[Legal Status](#)[Go to first matching text](#)

**JP02006584 A**  
**ADHESIVE**  
**BASF AG**

**Abstract:**

**PURPOSE:** To provide increased fluidity and good wet adhesiveness by adding polymer dispersion liquid whose viscosity is increased by specific compound and an additive to an adhesive. **CONSTITUTION:** By reacting ends of normal-chain or branching low-grade alkylene oxide (co)polymer with C6-18 alkyl- or alkylene-glycidyl ether in C8-20 1,2-alkylene oxide, alkyl chain, or alkylene chain, compound represented by formula I [R is 2-6-hydric alcohol residue of C2-10 which are combined through O, R' is C6-18 alkyl, alkoxy-methyl, alkenyl-oxy- methyl, or their mixture in alkyl, alkoxy, or alkenyl hydroxy, A is group represented by only formula II, or mixture group by the formula II and formula III-VI and more than 50mol of A is group represented by formula II, x is 12-500, y is averagely 0.3-5, and n is 2-6] is provided. The adhesive is added by 35-70wt.% of polymer dispersion liquid whose viscosity is increased by the compound of 0.02-2wt.% and an ordinary additive.

[no drawing]

**Inventor(s):**

AYDIN ORAL  
ROCKSTROH HERMANN  
GOERTZ HANS-HELMUT

**Application No.** 01052193 JP01052193 JP, **Filed** 19890306, **A1 Published** 19900110

**Original IPC(1-7):** C09J17102

C08L07102 C07C04311

Current IPC-R	invention	version	additional	version
Advanced	<b>C08G06526</b>	20060101		
	<b>C09J15700</b>	20060101		
	<b>C09J17102</b>	20060101		
	<b>C09K00300</b>	20060101		
Core	<b>C08G06500</b>	20060101		
	<b>C09J15700</b>	20060101		
	<b>C09J17100</b>	20060101		
	<b>C09K00300</b>	20060101		

**Priority:**

DE 88 3807238 19880305

**Patents Citing This One** No US, EP, or WO patent/search reports have cited this patent.



Home



Search



List



First



Prev

Go to



Next



Last

For further information, please contact:

[Technical Support](#) | [Billing](#) | [Sales](#) | [General Information](#)



Home



Search



List

Back to  
Record**MicroPatent® PatSearch FullText: Record 1 of 1**

Family of JP2006584A

How It Works

**MicroPatent® Family Lookup**

Stage 1 Patent Family - "Complex"				Priorities and Applications			
CC	Document Number	KD	Publication Date	CC	Application or Priority Number	KD	Application or Priority Date
<input type="checkbox"/>	AT 67231	T	19910915	AT	89103448	T	19890228
				DE	3807238	A	19880305
				EP	89103448	A	19890228
<input type="checkbox"/>	AU 3093689	A	19890907	AU	3093689	A	19890303
				DE	3807238	A	19880305
<input type="checkbox"/>	DE 3807238	A1	19890914	DE	3807238	A	19880305
<input type="checkbox"/>	DE 58900265	D1	19911017	DE	3807238	A	19880305
				DE	58900265	A	19890228
<input type="checkbox"/>	EP 0332015	A1	19890913	EP	89103448	A	19890228
				DE	3807238	A	19880305
<input type="checkbox"/>	EP 0332015	B1	19910911	EP	89103448	A	19890228
				DE	3807238	A	19880305
<input type="checkbox"/>	FI 891033	A	19890906	FI	891033	A	19890303
				DE	3807238	A	19880305
<input type="checkbox"/>	FI 891033	D0	19890303	FI	891033	A	19890303
				DE	3807238	A	19880305
<input type="checkbox"/>	JP 2006584	A	19900110	JP	5219389	A	19890306
				DE	3807238	A	19880305

9 Publications found.  
 Information on the left side of the table relates to publication number, kind, and date;  
 information on the right  
 covers the corresponding application and priority data for each publication.  
 Legend: CC=Country Code KD=Kind (Publication kind can differ from application/priority kind.)

Order Selected Documents

Display the Extended Patent Family

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

平2-6584

⑤ Int.Cl.<sup>5</sup>

C 09 J 171/02  
C 08 L 71/02  
// C 07 C 43/11

識別記号

JFW  
LQD

庁内整理番号

6944-4J  
6944-4J  
7419-4H

④ 公開 平成2年(1990)1月10日

審査請求 未請求 請求項の数 2 (全7頁)

⑭ 発明の名称 接着剤

② 特 願 平1-52193

② 出 願 平1(1989)3月6日

優先権主張 ② 1988年3月5日 ③ 西ドイツ(DE) ⑩ P 38 07 238.6

⑯ 発 明 者 オーラル・アイディン ドイツ連邦共和国6800マンハイム1・ゾフィーンシュトラ  
ーセ14

⑯ 発 明 者 ヘルマン・ロツクスト ドイツ連邦共和国6701マックスドルフ・ワイゼンハイマー  
ロー シュトラーセ28

⑰ 出 願 人 ビーエーエスエフ・ア ドイツ連邦共和国6700ルードウィツヒスハーフェン・カー  
クチエンゲゼルシャフ  
ト ルーボツシユーストラーセ38

⑱ 代 理 人 弁理士 高橋 淳一  
最終頁に続く

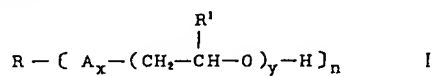
明 細 書

発 明 の 名 称

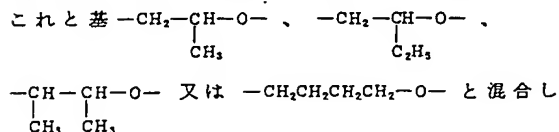
接 着 剤

特 許 請 求 の 範 囲

1. 一般式



(式中Rは酸素原子を介して結合する2～10個の炭素原子を有する2～6価のアルコールの残基、R<sup>1</sup>はアルキル基、アルコキシ基又はアルケニルオキシ基中にそれぞれ6～18個の炭素原子を有するアルギル基、アルコキシメチル基又はアルケニルオキシメチル基あるいはこれらの基の混合物、Aは基—CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>—O—の単独又はこれと基—CH<sub>2</sub>—CH—O—、—CH<sub>2</sub>—CH—O—、



た基であり、その際Aは少なくとも50モル%

の—CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>—O—を意味し、xは12～500の数、yは平均で0.3～5の数、nは2～6の整数である)で表わされる化合物により増粘されていることを特徴とする、結合剤としての重合体分散液のほかに普通の添加物を含有する、重合体分散液を基礎とする接着剤。

2. 全量に対し0.01～5重量%の少なくとも1種の式Iの化合物を含有することを特徴とする、第1請求項に記載の接着剤。

発 明 の 詳 細 な 説 明

本発明は、重合体分散液を基礎とする改善された性質を有する接着剤に関する。

重合体分散液を基礎とする接着剤を製造する場合は、各用途に適合する良好な加工性を得るために、粘度を調節する添加物を用いて分散液を調製する。

例えば重合体分散液を基礎とする接着剤を、吸水性の基質例えば紙、繊維製品、発泡物質、コンクリート又は煉瓦に塗布する場合、この調

製物は易流動性により加工できるべきであるが、他方では接着層が表面上に固定される粘性を有すべきであり、これにより接着剤は多孔質材料を貫通することなく接着のために使用できる。

分散液を基礎とする被覆用接着剤、包装用接着剤及び木材用接着剤の場合は、接着の良好な最終特性のほか、良好な流動性（ほぼニュートン流れ）と共に比較的高い粘度を有する接着剤調製物が用いられる。これにより例えば高速運転の包装機における飛散が抑制され、良好な圧潤接着能が得られる。

この種の接着剤調製物の機械的加工、例えば家具のシート被覆（張り板に対するポリ塩化ビニルシート）において、調製物が限界流れを有する場合は問題がある。

重合体分散液を、有機ならびに無機の材料を基礎とする種々の天然及び合成増粘剤により増粘できることが知られており、その例はセルロース、セルロース誘導体、カゼイン、カゼインボラックス混合物、ベントナイト、微粉状珪酸、

原子を有するアルキル基、アルコキシメチル基又はアルケニルオキシメチル基あるいはこれらの基の混合物、Aは基 $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O}-$ の単独又はこれと基 $-\text{CH}_2-\underset{\text{CH}_3}{\text{CH}}-\text{O}-$ 、 $-\text{CH}_2-\underset{\text{C}_2\text{H}_5}{\text{CH}}-\text{O}-$ 、

$-\underset{\text{CH}_3}{\text{CH}}-\underset{\text{CH}_3}{\text{CH}}-\text{O}-$  又は  $-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O}-$  と混合

した基であり、その際Aは少なくとも50モル%の $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O}-$ を意味し、xは12～500の数、yは平均で0.3～5の数、nは2～6の整数である）で表わされる化合物を増粘剤として添加することにより、接着剤調製物のための重合体分散液を、接着剤の種々の分野に対するその加工性に有利な影響を与えるように変性できることを見出した。

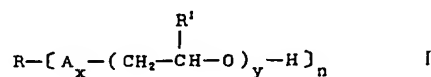
この種の化合物は、水を基礎とする水圧液体のための増粘剤（US 4411819、4649224、4665239、WO 84/00361）、ならびに熱い金属を焼入れするための水性冷却液体用の増粘剤（US 4381205）としてすでに提案され

水溶性高分子生成物例えばポリ（アクリル）酸塩、ビニルピロリドンの水溶性の単独及び共重合体、ならびに他の水溶性高分子化合物である。

これらすべての増粘剤は、調製物の構造粘性を多少とも顕著にし、特に重合体ポリ酸塩を基礎とする多くのものは酸性pH範囲で無効である。

したがって本発明の課題は、その加工性を各利用分野に容易に適合せうるように接着のために用いられる分散液を流動学的に変性することである。

本発明者らは、一般式



（式中Rは酸素原子を介して結合する2～10個の炭素原子を有する2～6価のアルコールの残基、R<sup>1</sup>はアルキル基、アルコキシ基又はアルケニルオキシ基中にそれぞれ6～18個の炭素

た。しかし接着剤のための増粘剤としてのその優れた適性は、予想できなかった。

本発明に用いられる増粘剤は、直鎖状又は分岐状の低級アルキレンオキシドの単独又は共重合体からなり、その末端を8～20個の炭素原子を有する1,2-アルキレンオキシドと、あるいはアルキル鎖又はアルキレン鎖中に6～18個の炭素原子を有するアルキル又はアルキレングリシジルエーテルと反応させたポリエーテルポリオールである。その平均分子量は1000～75000の範囲にある。

このポリエーテルポリオールは、例えばEP 61822及び116564の方法により、2～10個の炭素原子を有する多価アルコール（水酸基2～6個を有する）を、エチレンオキシド単独とあるいはエチレンオキシド及び3～4個の炭素原子を有する1種又は数種のアルキレンオキシドと反応させ（後者の場合は統計的共重合体を望むならば混合物中で反応を行い、ブロック共重合体を望むならば順次に反応を行う）、

次いでこの中間体を、8～20個の炭素原子及び末端エポキシド基を有するアルキレンオキシドの少なくとも0.3当量（水酸基1個当り）と、又はアルキル基又はアルキレン基中に6～18個の炭素原子を有するアルキル—又はアルキレングリシジルエーテルの0.3当量と反応させることにより得られる。この製造は、例えばUS 4398045に記載のようにして、 $C_2$ —又は $C_2$ —及び $C_3$ —/ $C_4$ —エポキシドから構成されたすでに存在するポリアルキレンオキシドの単独又は共重合体を、前記の長鎖アルキレンオキシド又はグリシジルエーテルと反応させることにより行うこともできる。

2～6価のアルコールとは、2～6個の水酸基を有するアルコールを意味する。個々には、それぞれ2～10個好ましくは2～6個の炭素原子を有するアルカンポリオール、アルケンポリオール、アルキンポリオール又はオリゴオキシアルキレングリコールである。

好適なアルカンポリオールの例は、エチレン

ジエチレン単位だけから構成されていてよく、そのほかに3～4個の炭素原子を有するオキシアルキレン単位を50モル%以下好ましくは30モル%以下の量で含有していてもよい。相当するアルキレンオキシドは特にプロピレンオキシドであるが、1,2-ブチレンオキシド、2,3-ブチレンオキシド、さらにテトラヒドロフランであつてもよい。相当する共重合体は統計的なものでもブロック共重合体でもよい。これらの共重合体のうち、エチレンオキシド及びプロピレンオキシドを70:30ないし95:5の重量比で含有するものが特に好ましい。

それぞれ8～20個又は9～21個の炭素原子を有する、鎖端において組込まれる長鎖のエポキシド又はグリシジルエーテルの製造は、常法により $\alpha$ -オレフィンの酸化又は脂肪アルコールとエピクロルヒドリンとの反応によつて行われる。

長鎖の1,2-アルキレンオキシド又はグリシジルエーテルの量は、分子全体に対して一般に

グリコール、1,2-及び1,3-プロピレングリコール、ネオペンチルグリコール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、トリメチロールプロパン、グリセリン、ペンタエリスリット、2,3,4,5-ヘキサンテトラオール、ソルビット及び蔗糖である。

アルケンポリオールの例は、2-ブテン-1,4-ジオール、2-ヘキセン-1,4,6-トリオール、1,5-ヘキサジエン-3,4-ジオール及び3-ヘプテン-1,2,6,7-テトラオールである。

アルキンジオールの例は、2-ブチン-1,4-ジオール、2-ヘキシン-1,4,6-トリオール及び4-オクチン-1,2,7,8-テトラオールである。

オリゴオキシアルキレングリコールの例は、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール及びジプロピレングリコールである。

ポリエーテルポリオールの基本骨格は、オキ

0.5～75重量%である。長鎖エポキシド又はグリシジルエーテルと多価アルコールの個々の水酸基との平均モル比は、0.3～5好ましくは0.5～2の範囲にある。

長鎖1,2-エポキシドの例は、1,2-エポキシオクタン、1,2-エポキシドデカン、1,2-エポキシヘキサデカンならびに市場で入手できるこれらのエポキシドの混合物である。

アルキルグリシジルエーテルの例は、オクテル、デシル、ドデシル、テトラデシル、ヘキサデシル、2-メチルドデシル及び2-ヘキシルドデシルグリシジルエーテルである。

増粘剤としては、分子量が1000～75000のポリエーテルポリオールが好ましく、このものは2価又は3価のアルコールをエチレンオキシドと、場合により30重量%以下のプロピレンオキシドと混合して反応させ、次いで8～18個の炭素原子を有する1,2-アルキレンオキシドの少なくとも1種、又はアルキル基もしくはアルケニル基中に8～18個の炭素原子

を有するアルキル又はアルケニルグリシジルエーテルの少なくとも1種と、2価又は3価のアルコール1モルに対して2～5モルの量でさらに反応させることにより得られる。

重合体分散液の重合体は、接着剤のための普通の組成を有してよく、例えばアクリル酸及び／又はメタクリル酸と多くの場合1～10個特に4～8個の炭素原子を有する直鎖状又は分岐状のアルコールとのエステルから、ビニル芳香族単量体例えばスチロールから、あるいは2～10個特に2～4個の炭素原子を有するカルボン酸のビニルエステル、ハロゲン化ビニル及び／又はービニリデン及び／又は1,3-ジオレフィン好ましくはブタジエンから誘導される。特に重要なものは、接着剤の性質を有する重合体分散液である。したがってその重合体がローブチル、イソブチル及び2-エチルヘキシルアクリレート、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル及びラウリン酸ビニルから場合によりこれらを相互に混合して及び／又は例えばエチレン、

スチロール及びブタジエンと混合して構成されている重合体分散液が特に適している。重合体分散液の固形物含量は、一般に35～70重量%特に40～60重量%の範囲の重合体である。

結合剤としての重合体分散液及び増粘剤のほかに、他の成分(添加物)としては、例えば普通の無機の水不溶性粉末、ならびに充填剤としての有機樹脂、可塑剤、分散助剤及び安定剤が添加される。

本発明による増粘剤はその効果がpH値にはほとんど依存しないので、多くの普通のものに比して、1～10の全pH範囲で利用できる。この増粘剤は水から、あるいは水と混合しうる溶剤例えばアルコール又はグリコールとの水性混合物から、この増粘剤が溶解する普通の溶剤例えばエステル、ケトン又は炭化水素から、可塑剤、液状樹脂又は液状の非イオン性界面活性剤例えば脂肪アルコールアルコキシレート、アルキルフェノールアルコキシレート又は脂肪酸アルコキシレートから加工することができる。増

粘効果がきわめて強いため、約10%増粘剤溶液を用いて操作することが特に有利である。

全調製物における式Iの増粘剤(固形分100%)の割合は、0.02～2重量%好ましくは0.05～1.0重量%である。他の増粘剤例えばヒドロキシエチルセルロースと組合せるときは、この量を明らかに低下させることができる。増粘剤は好ましくは水溶液として、あるいは水及び少なくとも一部は水と混合しうる溶剤からの混合物として用いられる。

下記の調製物及び実施例中の部及び比率は重量に関する。

式Iの増粘剤の組成:

調製物

V1: R = 1,1,1-トリメチロ  
ールプロパン基、  
Oを介して結合

A = EO及びPO、 10%水溶液  
モル比87:13

R<sup>1</sup> = C<sub>13</sub>～C<sub>18</sub>-アルキル

x = 130

y = 0.75

n = 3

V2: R = 1,1,1-トリメチロ  
ールプロパン基、  
Oを介して結合

A = EO及びPO、  
モル比87:13

ブチルジグリコ  
ール/水1:4中  
25%

R<sup>1</sup> = C<sub>14</sub>-アルキル

x = 130

y = 1

n = 3

V3: R = 1,1,1-トリメチロ  
ールプロパン基、  
Oを介して結合

A = EO及びPO、  
モル比3:1

50%イソプロ  
パノール溶液

R<sup>1</sup> = C<sub>16</sub>-アルキル

x = 120

y = 2

n = 3

V4:  $R = -O-CH_2-CH_2-O-$ 

A = 100% EO 10%水溶液

 $R^1 = C_{10}$ -アルキル

X = 150

y = 2

n = 2

V5:  $R = -O-CH_2-CH_2-O-$ 

A = 100% EO 10%水溶液

 $R^1 = C_{10}$ -アルキル

x = 150

y = 4

n = 2

V6:  $R = 1,1,1$ -トリメチロ  
ールプロパン基、  
Oを介して結合A = 100% EO ブチルジグリコ  
ール/水1:1中  
25% $R^1 = C_{10}$ -アルキル25℃での粘度: 120 mPas  
(コントラバス・レオメーターSTV, AIII)

pH値: 5.2

フィルムのガラス転移温度: -20℃

PD3: ビニルアセテート及びアクリル酸ブチ  
ルエステルからの熱架橋性共重合体の市  
販の50%水性分散液。25℃での粘度: 90 mPas  
(コントラバス・レオメーターSTV, BIII)

pH値: 5.0

フィルムのガラス転移温度: +19℃

PD4: ビニルエステル-アクリルエステル-  
共重合体の市販の55%水性分散液。こ  
れは繊維性床材の貼りつけのために用い  
られる。25℃での粘度: 1000 mPas  
(コントラバス・レオメーターSTV, BIII)

pH値: 6.0

フィルムのガラス転移温度: +6℃

x = 127

y = 1

n = 3

EO = エチレンオキシド

PO = プロピレンオキシド

重合体分散液:

PD1: アクリル酸ブチルエステル及びアクリ  
ルニトリルからの熱架橋性共重合体の市  
販の50%水性分散液。これはブロック  
加工及び被覆のための接着剤の製造に用  
いられる。25℃での粘度: 25 mPas  
(コントラバス・レオメーターSTV, AIII)

pH値: 3.2

フィルムのガラス転移温度: -36℃

PD2: アクリル酸エステル及びアクリル酸か  
らの共重合体の市販の60%水性分散液。  
これは床材の接着のための接着剤の製造  
に用いられる。PD5: ビニルクロリド、アクリルエステル及  
びアクリルニトリルからの共重合体の市  
販の55%水性分散液。これは包装分野  
において保護塗装用分散液として用いら  
れる。25℃での粘度: 15 mPas  
(コントラバス・レオメーターSTV, BIII)

pH値: 1.8

フィルムのガラス転移温度: -13℃

PD6: ビニルアセテート及びブチルアクリレ  
ートからのカルボニル基含有共重合体の  
市販の50%水性分散液。これは紙及び  
フリースの加工のための接着剤の製造な  
らびに繊維性基材のための塗装剤として  
用いられる。25℃での粘度: 22 mPas  
(コントラバス・レオメーターSTV, BIII)

pH値: 4.1

フィルムのガラス転移温度: -13℃



特開平2-6584 (6)

PD7: アクリル酸、ステロール及びブチルアクリレートからの共重合体の、亜鉛テトラアミンアセテート錯化合物含有の市販の50%水性分散液。

25℃での粘度: 90 mPas  
(コントラバス・レオメーターSTV, BII)

pH値: 9.0

フィルムのガラス転移温度: +23℃

PD8: カルボキシル基含有アクリルエステル共重合体の市販の60%水性分散液。これは粘着製品のための粘着性接着剤の製造に用いられる。

25℃での粘度: 110 mPas  
(コントラバス・レオメーターSTV, VIII)

pH値: 4.0

フィルムのガラス転移温度: -40℃

実施例1~12

前記の共重合分散液を本発明による前記の増粘剤と混合すると、流動性の良好な高粘度の混

合物が得られた。この混合物のデータを第1表にまとめて示す。

第1表

粘度を、ハーケー粘度計ロートビスコRV12においてDIN53019により、5.6 s<sup>-1</sup>のせん断速度で23℃において測定した。

実施例番号	ハーケー粘度計分散液各100部	増粘剤調製物〔部〕	粘度〔mPas〕	pH値
1	PD 1	1.0 V 3	11250	3.2
2	PD 1	1.5 V 4	3800	3.2
3	PD 1	4.5 V 5	9600	3.2
4	PD 1	1.2 V 6	5680	3.2
5	PD 1	1.4 V 1	6400	3.2
6	PD 2	2.0* V 2	12400	5.2
7	PD 3	3.1* V 2	6900	5.0
8	PD 4	8* V 2	33200	6.0
9	PD 5	1.2* V 2	10200	1.8
10	PD 6	1.0* V 2	5800	4.1
11	PD 7	1.0* V 2	15800	9.0
12	PD 8	2 V 2	21300	4.0

\* 増粘剤溶液V2を、水で10%の有効物質に希釈した。

実施例13

包装用接着剤のための増粘、接着試験:

重合体分散液PD6及びV2からの実施例10に示す混合物を、紙のラベル上にらせん状ドクターナイフで20 μmの層厚(湿潤)に塗布し、そのラベルの塗布された側を別の表面上に接着する。乾燥したのちその接着強度を評価した。

表面	実施例10の試料PD6 + V2	粘度のない分散液PD6
ポリスチロール	1	1~2
硬質PVCシート	1	1
ポリアミド	1	1
ガラス	1	1
アセテートシート	1~2	1
アルミニウムシート	1~2	1~2
ポリエステルシート	1	1
UV一塗装紙	2	2
ポリプロピレンシート*	1	1
ポリエチレンシート*	1	1

\* コロナ前処理

評点: 1 紙の全表面が破れる 3 充分な接着  
2 きわめて良好な接着 4 接着しない

本発明の増粘剤の添加により、接着性の低下を生ずることなしに、この使用のために必要な高い粘度がほとんどニュートン流れと共に得られる。

実施例14

高い粘度及び良好な流動性を有する増粘された分散液を、DIN68603により木材接着剤として試験した。

a) PD7 100部 V2 2部 b) PD7 100部 V6 2部 c) PD7 100部 V1\* 3部

\* ただし水/ブチルジグリコール(1:1)中の25%溶液として

これらの接着剤をブナ材上にブラシで塗り、すぐに貼りつける。接着表面は4 cm<sup>2</sup>である。この表面に接着の際300gの荷重をかけた。

接着強度をDIN68603-B1/1により5回の個々の評価値から測定した。

試料	接着強度 (N/mm <sup>2</sup> )
14 a	6.9
14 b	8.9**
14 c	8.9**

\*\* 部分的に材料破損

出願人 ビーエーエスエフ・アクチエンゲゼルシャフト

代理人 弁理士 高 橋 淳 一

第1頁の続き

⑦発明者 ハンスーヘルムート・ ドイツ連邦共和国6713フラインスハイム・アム・ヴルムベ  
ゲルツ ルク11